# WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6;

B41M 3/14, B42D 15/00, 15/10, G07D 7/00, G06K 19/14, G09F 3/00

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/38700

**A1** (43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

5. August 1999 (05.08.99)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP99/00593

- (22) Internationales Anmeldedatum: 29. Januar 1999 (29.01.99)
- (30) Prioritätsdaten:

198 04 012.1

2. Februar 1998 (02.02.98)

DE

- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): GIESECKE & DEVRIENT GMBH [DE/DE]; Prinzregentenstrasse 159, D-81677 München (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KAULE, Wittich [DE/DE]; Lindacher Weg 13, D-82275 Emmering (DE). SCHWENK, Gerhard [DE/DE]; Primelstrasse 106, D-82178 Puchheim (DE). STENZEL, Gerhard [DE/DE]; Fichtenstrasse 88, D-82110 Germering (DE).
- (74) Anwalt: KLUNKER, SCHMITT-NILSON, HIRSCH; Winzererstrasse 106, D-80797 München (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

#### Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen

- (54) Title: PRINTED DOCUMENT HAVING A VALUE, WITH LUMINESCENT AUTHENTICITY FEATURE
- (54) Bezeichnung: BEDRUCKTES WERTDOKUMENT MIT EINEM LUMINESZIERENDEN ECHTHEITSMERKMAL

#### (57) Abstract

The invention relates to a printed document having a value and comprising at least one authenticity feature in the form of a luminescent substance on the basis of a host lattice doped with at least one rare-earth metal. The host lattice absorbs essentially in the visible spectrum, can be excited at least in parts of the visible spectrum and is transparent at least in parts of the infrared spectrum. The luminescent substance is present in the volume of the document having a value at a concentration which is such that the properties of said document are only just not affected. Thulium is used as the rare-earth metal.

#### (57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft ein bedrucktes Wertdokument mit zumindest einem Echtheitsmerkmal in Form einer lumineszierenden Substanz auf der Basis von mit wenigstens einem Seltenerdmetall dotierten Wirtsgitter. Das Wirtsgitter absorbiert im wesentlichen im sichtbaren Spektralbereich, ist zumindest in Teilen des sichtbaren Spektralbereichs anregbar und zumindest in Teilbereichen des IR-Spektralbereichs transparent. Die lumineszierende Substanz liegt im Volumen des Wertdokuments in einer so hohen Konzentration vor, dass die Eigenschaften des Wertdokuments gerade nicht beeinträchtigt werden. Bei dem Seltenerdmetall handelt es sich um Thulium,

#### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	ТJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
ВJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten vo
CA	Kanada	ľТ	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
СН	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

WO 99/38700 PCT/EP99/00593

BEDRUCKTES WERTDOKUMENT MIT EINEM LUMINESZIERENDEN ECHTHEITSMERKMAL

Die Erfindung betrifft ein bedrucktes Wertdokument mit zumindest einem Echtheitsmerkmal in Form einer lumineszierenden Substanz auf der Basis von mit wenigstens einem Seltenerdmetall dotierten Wirtsgitter.

Die Absicherung von Wertdokumenten mittels lumineszierender Substanzen ist bereits seit langem bekannt. Auch die Verwendung von Seltenerdmetallen wurde in diesem Zusammenhang bereits diskutiert. Sie haben den Vorteil, dass sie schmalbandige Emissionslinien aufweisen, die besonders charakteristisch und deshalb von Emissionen anderer Stoffe messtechnisch sicher unterscheidbar sind. Vorzugsweise werden dabei Stoffe verwendet, die Emissionslinien im unsichtbaren Spektralbereich, insbesondere im infraroten (IR) Spektralbereich aufweisen.

15

20

5

10

Um den Fälschungsschutz noch zu erhöhen, können die Seltenerdmetalle zusammen mit anderen Stoffen derart in Wirtsgittern eingebaut werden, dass das Anregungs- und/oder Emissionsspektrum des Seltenerdmetalls in charakteristischer Weise beeinflusst wird. Durch Kombination mit geeigneten absorbierenden Stoffen kann beispielsweise ein Teil der Anregungs- und/ oder Emissionsbereiche des Seltenerdmetalls unterdrückt werden. Die Beeinflussung kann jedoch auch in einer "Verformung" z.B. durch Dämpfung bestimmter Bereiche der Anregungs- oder Emissionsspektren bestehen.

25 Ausgehend von diesem Stand der Technik liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, ein Wertdokument mit einer Echtheitskennzeichnung in Form von lumineszierenden Substanzen zu schaffen, die gegenüber dem Stand der Technik noch schwerer nachweisbar sind und damit einen erhöhten Fälschungsschutz bieten.

25

Die Lösung dieser Aufgabe ergibt sich aus den unabhängigen Ansprüchen. Weiterbildungen sind Gegenstand der Unteransprüche.

Wie bereits erläutert, werden zur Echtheitsüberprüfung von Wertdokumenten, die im IR-Spektralbereich liegenden Emissionslinien der Seltenerdmetal-5 le genutzt. Vorzugsweise nutzt man Emissionslinien, die im nahen IR-Bereich liegen, da diese noch mit preiswerten Sensoren detektierbar sind und aufgrund des günstigen Signal-/Rauschverhältnisses Fehlmessungen relativ leicht vermeidbar sind. Üblicherweise verwendet man hierfür handelsübliche Silizium (Si)- oder Germanium (Ge)-Detektoren. Je weiter die Emissions-10 linien im IR-Spektralbereich liegen, desto schwieriger wird der Nachweis der Emission. Denn ganz allgemein gilt, dass die Detektivität oder Ansprechempfindlichkeit von Fotodetektoren abnimmt, je langwelliger die zu messende Strahlung ist. Das heißt, dass das Signal-/Rauschverhältnis der detektierten Signale mit zunehmender Wellenläge im Allgemeinen geringer wird. 15 Demzufolge werden die zur Auswertung der Signale notwendige Messtechnik und das zu benötigte Know-how immer aufwendiger. Wenn diese messtechnisch schwer nachweisbaren Lumineszenzstoffe darüber hinaus in den zu prüfenden Wertdokumenten nur in geringen Konzentrationen vor-20 liegen, ist ein Nachweis der Emissionslinien nur unter besonderen Bedingungen möglich.

Die Erfindung beruht nun auf der Erkenntnis, dass die mit zunehmender Emissionswellenlänge im IR-Spektralbereich schwierige Nachweisbarkeit bestimmter Substanzen sehr vorteilhaft zur Erhöhung des Fälschungsschutzes genutzt werden kann.

Erfindungsgemäß wird daher zur Absicherung von Wertdokumenten eine lumineszierende Substanz verwendet, deren Emissionsspektrum außerhalb

der Ansprechempfindlichkeit von Si- oder Ge-Detektoren oder zumindest an der Grenze der Nachweismöglichkeit eines Ge-Detektors liegt. In diesem Fall muss der messtechnische Aufwand zum Nachweis mit einem Ge-Detektor um ein Vielfaches erhöht oder z.B. auf Bleisulfid (PbS)-, Indiumarsenid (InAs)-, Gallium-Indiumarsenid (GaInAs)- oder Bleiselenid (PbSe)-Detektoren zurückgegriffen werden. Deren Detektivität ist aber um Zehnerpotenzen geringer als die von Si-Detektoren, so dass die messtechnische Auswertung der Signale eines solchen Detektors grundsätzlich deutlich aufwendiger ist.

10

5

Die für die Echtheitsabsicherung geeigneten Substanzen können Stoffe auf der Basis von thuliumdotierten Wirtsgittern sein. Thulium weist Emissionslinien im Wellenlängenbereich von 1,6 bis 2,1 µm, insbesondere im Bereich von 1,7 und 1,9 µm auf und kann daher mit Ge-Detektoren nur mit sehr hohem Aufwand nachgewiesen werden, da die Ansprechempfindlichkeit von Ge-Detektoren bei einer Wellenlänge von 1,6 µm bereits sehr klein ist und im Bereich von 1,9 µm gegen null geht. Die erfindungsgemäßen Substanzen können allerdings mit Hilfe von PbS-, InAs- oder GaInAs-Detektoren nachgewiesen werden. Da auch die Ansprechempfindlichkeit dieser Detektoren im Wellenlängenbereich von 1,6 bis 2 µm bereits sehr gering ist, muss das Thulium in ein Wirtsgitter eingesetzt werden, das eine möglichst hohe Effektivität des Thuliums gewährleistet, d.h. für eine möglichst hohe Quantenausbeute sorgt.

25 Erfindungsgemäß werden Wirtsgitter verwendet, die breitbandig absorbierende Bestandteile enthalten und die absorbierte Energie mit einem hohen Wirkungsgrad auf das Thulium übertragen. Vorzugsweise liegt die Quantenausbeute der erfindungsgemäßen lumineszierenden Substanzen im Bereich von 50 bis 90 %.

5

15

20

Außerdem ist es erfindungsgemäß vorgesehen, die lumineszierende Substanz im jeweiligen Wertdokument in so hoher Konzentration zu verwenden, dass die Eigenschaften des Wertdokuments gerade nicht beeinträchtigt werden. Die maximale Konzentration hängt von verschiedenen Parametern ab, wie z.B. der Art der Einbringung oder den gewünschten Eigenschaften (Farbe oder dergleichen) des Wertdokuments.

Wird der Lumineszenzstoff beispielsweise in eine Papiermasse eingebettet, so liegt die gerade noch zulässige Konzentration von Fremdstoffen bei wenigen Gew.%. Überschreitet man die zulässige Fremdstoffkonzentration, so hat 10 dies deutliche Änderungen der Stoffeigenschaften zur Folge. Eine zu hohe Fremdstoffkonzentration im Papier beispielsweise reduziert die Reißfestigkeit des Papiers. Besitzt der Lumineszenzstoff eine Eigenfarbe, so reicht gegebenenfalls bereits die Konzentration von etwa 0,1 Gew.%, um die Farbe des gesamten Papiers zu verändern. Eine überhöhte Fremdstoffkonzentration in Druckfarben macht die Farben brüchig und reduziert die gute Haftung auf der Dokumentenoberfläche. Auch hier kann bereits eine Konzentration von 1 Gew.% eines farbigen Lumineszenzstoffes genügen, um den Gesamtfarbeindruck der Druckfarbe zu verfälschen. Dient dieser Lumineszenzstoff gleichzeitig als Farbpigment, kann die Grenzkonzentration andererseits auch erst bei dem physikalisch maximal möglichen Feststoffanteil von ca. 80 Gew.% erreicht werden.

Erfindungsgemäß liegt die untere Grenzkonzentration im Falle farbloser oder leicht gefärbter, lumineszierender Substanzen bei Einmischung in die 25 Papiermasse bei 0,1 Gew.%. Bei stärker gefärbten Lumineszenzstoffen kann die Grenzkonzentration auch schon bei 0,01 Gew.% liegen. Vorzugsweise liegt die Konzentration im Bereich von 0,05 bis 1 Gew.%. Die untere Grenzkonzentration der lumineszierenden Substanz in einer auf das Wertdokument aufgebrachten Schicht beträgt dagegen etwa 1 Gew.%, beispielsweise für farbige Lumineszenzstoffe. Je nach Schichtzusammensetzung und Verwendungszweck liegt die Konzentration im Bereich von 1 bis 40 Gew.%, vorzugsweise im Bereich von 10 bis 30 Gew.%.

5

10

15

20

25

Das Einbringen der lumineszierenden Substanzen in gerade noch zulässiger, d.h. die genannten Eigenschaften des Wertpapiers nicht verändernder Konzentration verhindert Fälschungsversuche, bei denen in Unkenntnis der echten Lumineszenzstoffe weniger effektive Ersatzstoffe mit ähnlichen Emissionslinien eingesetzt werden, die aber dann, um messbare Signale zu erhalten, in höherer Konzentration dem Wertdokument beigegeben werden müssen. Dies führt zu erkennbaren Veränderungen des Wertdokuments oder der die lumineszierende Substanz enthaltende Druckfarbe. Im Falle farbiger Stoffe würde dies beispielsweise auch zu einer Verfärbung des Wertdokuments oder der Druckfarbe führen.

Die lumineszierenden Substanzen können gemäß der Erfindung auf verschiedenste Art und Weise in das Wertdokument eingebracht werden. So können die lumineszierenden Substanzen beispielsweise, wie bereits erwähnt, einer Druckfarbe zugemischt werden, die zusätzlich visuell sichtbare Farbzusätze enthält. Aber auch ein Zumischen der lumineszierenden Substanz zur Papiermasse ist möglich. Ebenso können die lumineszierenden Substanzen auf oder in einem Kunststoffträgermaterial vorgesehen werden, welches beispielsweise zumindest teilweise in die Papiermasse eingebettetwird. Das Trägermaterial kann hierbei die Form eines Sicherheitsfadens, einer Melierfaser oder einer Planchette haben.

Das Kunststoff- oder Papierträgermaterial kann jedoch auch an jedem beliebigen anderen Gegenstand, z.B. zur Produktsicherung befestigt werden. Das

Trägermaterial ist in diesem Fall vorzugsweise in Form eines Etiketts ausgebildet. Wehn das Trägermaterial Bestandteil des zu sichernden Produkts ist, wie es z.B. bei Aufreißfäden der Fall ist, ist selbstverständlich auch jede andere Formgebung möglich. In bestimmten Anwendungsfällen kann es sinnvoll sein, die lumineszierende Substanz als unsichtbare Beschichtung auf dem Wertdokument vorzusehen. Sie kann dabei vollflächig oder auch in Form von bestimmten Mustern,wie z.B. Streifen, Linien, Kreisen oder auch in Form von alphanummerischen Zeichen vorliegen. Um die Unsichtbarkeit des Lumineszenzstoffes zu gewährleisten, muss erfindungsgemäß entweder ein farbloser Lumineszenzstoff in der für die Druckfarbe oder den Beschichtungslack maximalen Konzentration, die gerade noch nicht die Eigenschaften der Beschichtung beeinträchtigt, verwendet werden oder ein farbiger Lumineszenzstoff in einer so geringen Konzentration, dass die Transparenz der Beschichtung gerade noch gegeben ist.

15

10

5

Unter der Bezeichnung "Wertdokument" sind im Rahmen der Erfindung Banknoten, Schecks, Aktien, Wertmarken, Ausweise, Kreditkarten, Pässe und auch andere Dokumente sowie Etiketten, Siegel, Verpackungen oder andere Elemente für die Produktsicherung zu verstehen.

20

25

Die erfindungsgemäßen lumineszierenden Substanzen weisen Emissionsspektren auf, die so weit im IR- Spektralbereich liegen, dass sie mit den für diesen Bereicht verfügbaren Detektoren nur unter hohem messtechnischen Aufwand gerade noch nachweisbar sind, wenn sie dem zu markierenden Wertdokument in maximaler, aber das Dokument nicht verändernder Menge zugemischt werden.

Derartige Lumineszenzstoffe werden im Folgenden als "Grenzleuchtstoffe" bezeichnet.

Sie besitzen gegenüber den übrigen, nicht an diesen Grenzen liegenden Leuchtstoffen den sicherungstechnischen Vorteil, dass sie auf anderen technischen Gebieten praktisch nicht eingesetzt werden und daher im Handel auch nicht erhältlich sind. Ferner ist die Nachweistechnik derart aufwendig, dass das Risiko der Analyse der messtechnischen Parameter relativ gering ist. Aber selbst wenn dem Fälscher die Existenz des Lumineszenzstoffs bekannt wäre, könnte er ihn, wie bereits erläutert, nur nachstellen, indem er alle für die Lumineszenz verantwortlichen Parameter exakt nachstellt. Lumineszenzstoffe mit schlechteren Eigenschaften verändern entweder die Eigenschaften des Wertdokuments nachhaltig oder sind in den Detektionseinrichtungen nicht mehr nachweisbar.

Weitere Ausführungsformen und Vorteile der Erfindung werden im Folgenden anhand der Figur und der Beispiele erläutert.

15

10

5

- Fig. 1 Detektivität verschiedener Detektoren,
- Fig.2 Emissionspektren eines erfindungsgemäßen Grenzleuchtstoffs,

20

25

Fig. 3 erfindungsgemäßes Sicherheitselement im Querschnitt.

Fig. 1 zeigt die Detektivität D\* verschiedener Detektoren in Abhängigkeit von der Wellenlänge  $\lambda$ . Sie ist ein Maß für die Ansprechempfindlichkeit des Detektors. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurden die Kurven nur im Bereich ihres Empfindlichkeitsmaximums dargestellt. Aus dieser Figur ergibt sich, dass Si- und GaAs-Detektoren im Bereich oberhalb 1,1  $\mu$ m nicht mehr eingesetzt werden können. Die Empfindlichkeit von Galiumarsenid kann durch Indiumzusätze weiter in den IR-Spektralbereich verschoben

5

10

werden. So ist ein Ga $_{0,7}$ In $_{0,3}$ As-Detektor bis etwa 1,2  $\mu$ m einsetzbar, während ein Ga $_{0,3}$ In $_{0,7}$ As-Detektor bis etwa 3  $\mu$ m einsetzbar ist. Allerdings nimmt in diesem Bereich die Detektivität stark ab. Aus dieser Figur ergibt sich ferner, dass Ge-Detektoren bis etwa 1,8  $\mu$ m verwendbar sind und dass im Bereich bis zu 3  $\mu$ m vorzugsweise PbS-Detektoren oder entsprechend angepasste Ga $_{x}$ In $_{x-1}$ As-Detektoren verwendet werden. Der Index x wird dabei so gewählt, dass das Detektivitätsmaximum bei der gewünschten Grenzwellenlänge liegt. Prinzipiell sind auch InAs-oder PbSe-Detektoren einsetzbar. Ihre Detektivität liegt jedoch noch eine Zehnerpotenz unter derjenigen von PbS-Detektoren. Zudem liegt das Detektivitätsmaximum bereits im Wellenlängenbereich von ca. 3 bis 4  $\mu$ m, so dass sie für den Nachweis von Thulium nicht optimal geeignet sind.

In Fig. 2 ist das Emissionsspektrum eines erfindungsgemäßen thuliumdotierten Grenzleuchtstoffes dargestellt. Die im sichtbaren und gegebenenfalls im 15 nahen IR auftretenden Emissionslinien des Thuliums werden durch das Wirtsgitter unterdrückt. Wie aus Fig. 2 ersichtlich, emittiert der Grenzleuchtstoff im Wellenlängenbereich zwischen ca. 1,6 und 2,1  $\mu$ m, und hier insbesondere im Bereich von 1,7 und 1,9  $\mu$ m. Vergleicht man dieses Emissionsspektrum mit den in Fig. 1 dargestellten Detektivitätskurven der Sensoren, 20 so stellt man fest, dass das Emissionsspektrum des erfindungsgemäßen Grenzleuchtstoffes mit Detektoren hoher Detektivität, d.h. mit Si- oder GaAs-Detektoren nicht nachgewiesen werden kann. Mit Ge-Detektoren, deren Detektivitätsmaximum bereits weiter in den IR-Spektralbereich verschoben ist, können Teile des in Fig. 2 gezeigten Emissionspektrums unter hohem 25 Aufwand gerade noch gemessen werden. Aber erst mit PbS-Detektoren ist ein voller Nachweis des gesamten Spektrums möglich. Diese Detektoren sind jedoch um ca. 2 Zehnerpotenzen weniger empfindlich als Silizium. Das bedeutet, dass das Signal-/Rauschverhältnis wesentlich schlechter ist als bei

Si-Detektoren und daher ein höherer messtechnischer Aufwand notwendig ist, um das Lumineszenzsignal des Grenzleuchtstoffes auswerten zu können. Gemäß der Erfindung wird gerade jedoch dieser Umstand dazu genutzt, die Fälschungssicherheit zu erhöhen.

5

10

Das Wirtsgitter für das erfindungsgemäße optisch aktive Thulium hat im Wellenlängenbereich von 1  $\mu$ m bis 10  $\mu$ m einen optisch transparenten Bereich. Das erfindungsgmäße Wirtsgitter enthält ferner als absorbierende Elemente Eisen oder Chrom, die praktisch im gesamten sichtbaren Spektralbereich absorbieren und damit anstelle der in diesem Bereich auftretenden einzelnen Anregungslinien des Thuliums einen größeren und an breitbandig leuchtende Lichtquellen besser angepassten Anregungsbereich haben.

Vorzugsweise weisen die erfindungsgemäßen Grenzleuchtstoffe eine Gra15 nat- oder Perovskitstruktur auf. Um eine möglichst hohe Effektivität des
Thuliums zu garantieren, werden im Falle einer Granatstruktur Wirtsgitter
mit der allgemeinen Formel

#### $A_3M_{5-x}Al_xO_{12}$

20

verwendet, worin A für ein Element aus der Gruppe Scandium (Sc), Yttrium (Y), Lanthan (La) und Gadolinium (Gd); M für Eisen (Fe) oder Chrom (Cr) steht und der Index x die Bedingung 0 < x < 4,99, vorzugsweise 0,5 < x < 2, erfüllt.

25

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform besteht das Wirtsgitter aus einem Yttrium-Aluminium-Eisen-Granat. Der sich hieraus ergebende Grenzleuchtstoff lässt sich durch die Formel

#### $Y_{3-z}Tm_zFe_{5-x}Al_xO_{12}$

beschreiben, worin der Index z die Bedingung 0,01 < z < 2, vorzugsweise 0,1 < z < 0,5 erfüllt.

5

10

Über den Anteil an nichtabsorbierendem Aluminium lässt sich die Absorption und damit die Helligkeit einer eventuell vorhandenen Eigenfarbe des Stoffes einstellen, so dass die lumineszierende Substanz auch in höherer Konzentration als Zusatzstoff für hellere Druckfarben eingesetzt werden kann.

Wird für das Wirtsgitter eine Perovskitstruktur verwendet, so lässt sich diese durch die allgemeine Formel

15

 $AMO_3$ 

beschreiben, worin

A für ein Element aus der Gruppe Scandium (Sc), Yttrium (Y) und der Lanthanide und

20 M für Eisen (Fe) oder Chrom (Cr) steht.

Die bevorzugte Ausführungsform für einen Leuchtstoff in einer Perovskitstruktur wird durch die Formel

25

Y<sub>1-z</sub>Tm<sub>z</sub>CrO<sub>3</sub>

beschrieben, worin der Index z die Bedingung 0,01 < z < 0,8, vorzugsweise 0,1 < z < 0,5 erfüllt.

Der Anregungsbereich dieser Grenzleuchtstoffe liegt im sichtbaren Spektralbereich und gegebenenfalls zusätzlich im nahen IR. Dieser Bereich deckt sich mit dem Strahlungsbereich von starken Lichtquellen, wie Halogenlampen, Blitzlampen oder dergleichen.

5

Im Folgenden werden einige Beispiele der erfindungsgemäßen Grenzleuchtstoffe näher erläutert.

### Beispiel 1:

10

Herstellung von thuliumaktiviertem Yttrium-Chrom-Mischgranat ( $Y_{2,8}Tm_{0,2}Cr_{1,2}Al_{3,8}O_{12}$ ):

15

49,43 g Yttriumoxid ( $Y_2O_3$ ), 30,28 g Aluminiumoxid ( $Al_2O_3$ ), 14,26 g Chrom(III)oxid ( $Cr_2O_3$ ), 6,03 g Thuliumoxid ( $Tm_2O_3$ ) und 100 g entwässertes Natriumsulfat ( $Na_2SO_4$ ) werden innig vermischt und im Korundtiegel 12 Stunden auf 1100 °C erhitzt.

20

Nach dem Abkühlen wird das Reaktionsprodukt zerkleinert, mit Wasser das Flussmittel herausgewaschen, als Nebenprodukt entstandenes Natriumchromat mit Schwefelsäure/Eisen(II)sulfat zu Chrom(III)sulfat reduziert und bei 100 °C an Luft getrocknet. Zur Erzielung einer möglichst hohen Kornfeinheit wird das Pulver anschließend in einer Rührwerkskugelmühle in Wasser vermahlen bis eine mittlere Korngröße von kleiner als 1  $\mu$ m vorliegt.

25

Nach dem Filtrieren und Trocknen erhält man ein hellgrünes Pulver.

#### Beispiel 2:

Herstellung von thuliumaktiviertem Yttrium-Chrom-Perovskit  $(Y_{0.9}Tm_{0.1}CrO_3)$ :

5

51,61 g Yttriumoxid (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), 38,6 g Chromoxid (Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), 9,79 g Thuliumoxid (Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) und 100 g entwässertes Natriumsulfat (Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) werden innig vermischt und in einem Korundtiegel 20 Stunden auf 1100 °C erhitz+.

10

Nach dem Abkühlen wird das Reaktionsprodukt zerkleinert, mit Wasser das Flussmittel herausgewaschen, als Nebenprodukt entstandenes Natriumchromat mit Schwefelsäure/Eisen(II)sulfat zu Chrom(III)sulfat reduziert und bei 100 °C an Luft getrocknet. Zur Erzielung einer möglichst hohen Kornfeinheit wird das Pulver anschließend in einer Rührwerkskugelmühle in Wasser entsprechend vermahlen.

20

25

15

Nach dem Filtrieren und Trocknenerhält man ein Pulver mit einer mittleren Korngröße von kleiner als 1  $\mu m$ .

#### Beispiel 3:

Herstellung von thuliumaktiviertem Gadolinium-Aluminium-Eisen-Mischgranat (Gd<sub>2,9</sub>Tm<sub>0,1</sub>Fe<sub>3,5</sub>Al<sub>1,5</sub>O<sub>12</sub>):

58,35 g Gadoliniumoxid (Gd $_2$ O $_3$ ), 8,49 g Aluminiumoxid (Al $_2$ O $_3$ ), 31,02 g Eisenoxid (Fe $_2$ O $_3$ ), 2,14 g Thuliumoxid (Tm $_2$ O $_3$ ) und 100 g entwässer-

5

15

tes Natriumsulfat (Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) werden innig vermischt und im Korundtiegel 12 Stunden auf 1100 % erhitzt.

Nach dem Abkühlen wird das Reaktionsprodukt zerkleinert, mit Wasser das Flussmittel herausgewaschen, abfiltriert und bei 100 °C an Luft getrocknet. Zur Erzielung einer möglichst hohen Kornfeinheit wird das Pulver anschließend in einer Rührwerkskugelmühle entsprechend in Wasser vermahlen.

Nach dem Filtrieren und Trocknen erhält man ein grünes Pulver mit einer mittleren Korngröße von kleiner als 1 μm.

Erfindungsgemäß wird die Fälschungssicherheit zusätzlich erhöht, wenn die lumineszierende Substanz in der für das jeweilige Wertdokument bzw. Sicherheitselement maximalen Konzentration verwendet wird. Die maximale Konzentration hängt dabei von verschiedenen Parametern ab, wie z.B. der Art der Einbringung oder den gewünschten Eigenschaft des Wertdokuments bzw. Sicherheitselements.

Fig. 3 zeigt eine Ausführungsform des erfindungsgemäßen Sicherheitselements. Das Sicherheitselement besteht in diesem Fall aus einem Etikett 2, das sich aus einer Papier- oder Kunststoffschicht 3, einer transparenten Abdeckschicht 4 sowie einer Klebstoffschicht 5 zusammensetzt. Dieses Etikett 2 ist über die Kleberschicht 5 mit einem beliebigen Substrat 1 verbunden. Bei diesem Substrat 1 kann es sich um Wertdokumente, Ausweise, Pässe, Urkunden oder dergleichen aber auch um andere zu sichernde Gegenstände, wie beispielsweise CDs, Verpackungen o. ä. handeln.

Der Lumineszenzstoff 6 ist in diesem Ausführungsbeispiel im Volumen der Schicht 3 enthalten. Handelt es sich bei der Schicht 3 um eine Papierschicht, so beträgt die Grenzkonzentration an Lumineszenzstoff erfindungsgemäß zwischen 0,05 und 1 Gew.%.

5

Alternativ könnte der Grenzleuchtstoff auch in einer nicht gezeigten Druckfarbe enthalten sein, die auf eine der Etikettenschichten, vorzugsweise auf die Oberfläche der Schicht 3 aufgedruckt wird. Die erfindungsgemäß gerade noch mögliche Maximalkonzentration bewegt sich in diesem Fall im Bereich von 10 bis 40 Gew.%.

10

15

Statt den Lumineszenzstoff in oder auf einem Trägermaterial vorzusehen, das anschließend als Sicherheitselement auf einem Gegenstand befestigt wird, ist es gemäß der Erfinding auch möglich, die lumineszierende Substanz direkt in das zu sichernde Wertdokument bzw. auf dessen Oberfläche in Form einer Beschichtung vorzusehen.

### <u>Patentansprüche</u>

- 1. Bedrucktes Wertdokument mit zumindest einem Echtheitsmerkmal in Form einer lumineszierenden Substanz auf der Basis von mit wenigstens einem Seltenerdmetall dotierten Wirtsgitter, das im Wesentlichen im sichtba-5 ren Spektralbereich absorbiert und anregbar ist und zumindest in Teilbereichen des IR-Spektralbereichs transparent ist, wobei das Seltenerdmetall Thulium ist und der Lumineszenzstoff im Volumen des Wertdokuments in einer so hohen Konzentration vorliegt, dass die Eigenschaften des Wertdokuments gerade nicht beeinträchtigt werden.
  - 2. Bedrucktes Wertdokument nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Lumineszenzstoff in einer Konzentration von höchstens 5 Gew.% im Dokumentenmaterial enthalten ist.

15

10

3. Bedrucktes Wertdokument nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das Wertdokument aus Papier besteht und die lumineszierende Substanz im Papier in einer Konzentration von 0,05 bis 1 Gew.% vorliegt.

20

25

4. Bedrucktes Wertdokument mit zumindest einem Echtheitsmerkmal in Form einer lumineszierenden Substanz auf der Basis von mit wenigstens einem Seltenerdmetall dotierten Wirtsgitter, das im Wesentlichen im sichtbaren Spektralbereich absorbiert und anregbar ist und zumindest in Teilbereichen des IR-Spektralbereichs transparent ist, wobei das Seltenerdmetall Thulium ist und der Lumineszenzstoff in einer auf dem Wertdokument aufgebrachten Schicht in einer so hohen Konzentration vorliegt, dass die Eigenschaften der Schicht nicht beeinträchtigt werden.

5. Bedrucktes Wertdokument nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die auf das Wertdokument aufgebrachte Schicht eine Druckfarbe ist, in welcher die lumineszierende Substanz in einer Konzentration von 1 bis 40 Gew. %, vorzugsweise von 10 bis 30 Gew. %, vorliegt.

5

20

25

- 6. Bedrucktes Wertdokument nach Anspruch 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, dass die lumineszierende Substanz als unsichtbare zumindest teilweise Beschichtung auf dem Wertdokument vorgesehen ist.
- 7. Bedrucktes Wertdokument nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die lumineszierende Substanz einer Druckfarbe zugemischt ist, die zusätzlich visuell sichtbare Farbzusätze enthält.
- 8. Bedrucktes Wertdokument nach wenigstens einem der Ansprüche 4 bis 7,
  15 dadurch gekennzeichnet, dass die Beschichtung die Form eines oder mehrerer Streifen aufweist.
  - 9. Bedrucktes Wertdokument nach wenigstens einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass der optisch transparente Bereich des mit Seltenerdmetallen dotierten Wirtsgitters im Bereich zwischen 1  $\mu$ m und 10  $\mu$ m liegt.
  - 10. Bedrucktes Wertdokument nach wenigstens einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass das Wirtsgitter als absorbierende Elemente Eisen oder Chrom enthält.
  - 11. Bedrucktes Wertdokument nach wenigstens einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass das Wirtsgitter eine Granat- oder Perovskitstruktur aufweist.

12. Bedrucktes Wertdokument nach wenigstens einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass sich die Granatstruktur durch die allgemeine Formel

5

#### $A_3M_{5-x}Al_xO_{12}$

beschreiben lässt, worin

A für ein Element aus der Gruppe Yttrium, Gadolinium, Scandium, und Lanthan;

- 10 M für Eisen oder Chrom steht und der Index x die Bedingung 0 < x < 4,99 erfüllt.
  - 13. Bedrucktes Wertdokument nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, dass der Index x die Bedingung 0 < x < 2 erfüllt.

15

14. Bedrucktes Wertdokument nach Anspruch 12 oder 13, dadurch gekennzeichnet, dass sich die lumineszierende Substanz durch die allgemeine Formel

20

#### $Y_{3-z}Tm_zFe_{5-x}Al_xO_{12}$

beschreiben lässt, worin der Index z die Bedingung 0.01 < z < 2, vorzugsweise 0.1 < z < 1 erfüllt.

25 15. Bedrucktes Wertdokument nach wenigstens einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass sich die Perovskitstruktur durch die allgemeine Formel beschreiben lässt, worin

A für ein Element aus der Gruppe Scandium, Yttrium und der Lanthanide; M für Eisen oder Chrom steht.

5 16. Bedrucktes Wertdokument nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass sich die lumineszierende Substanz durch die allgemeine Formel

#### Y<sub>1-z</sub>Tm<sub>z</sub>CrO<sub>3</sub>

- beschreiben lässt, worin der Index z die Bedingung 0,01 < z < 0,8, vorzugsweise 0,1 < z < 0,5 erfüllt.
  - 17. Bedrucktes Wertdokument nach einem der Ansprüche 1 bis 16, dadurch gekennzeichnet, dass die lumineszierende Substanz eine Quantenausbeute von 50 bis 90 % aufweist.
  - 18. Sicherheitselement, welches zumindest ein Trägermaterial und eine lumineszierende Substanz auf der Basis von mit wenigstens einem Seltenerdmetall dotierten Wirtsgitter aufweist, das im Wesentlichen im sichtbaren Spektralbereich absorbiert und anregbar ist und zumindest in Teilbereichen des IR-Spektralbereichs transparent ist, wobei das Seltenerdmetall Thulium ist, und die lumineszierende Substanz in einer so hohen Konzentration im Volumen des Trägermaterials vorhanden ist, dass die Eigenschaften des Sicherheitselements gerade nicht beeinträchtigt werden.

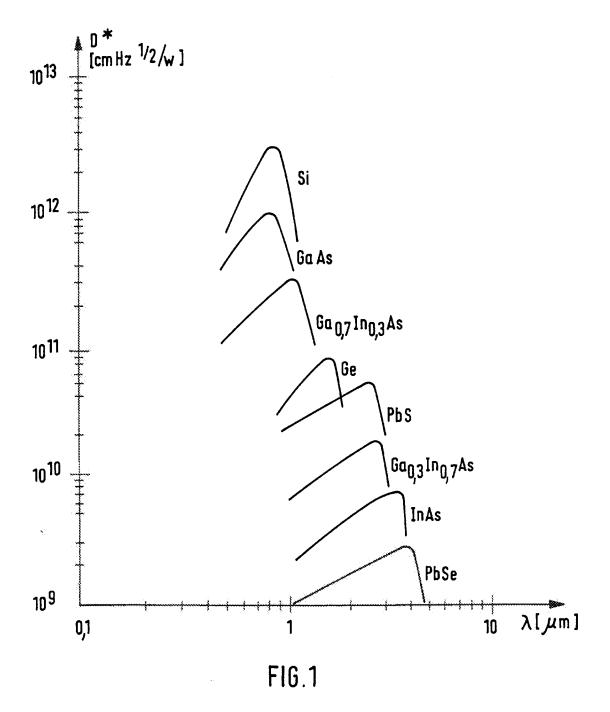
25

20

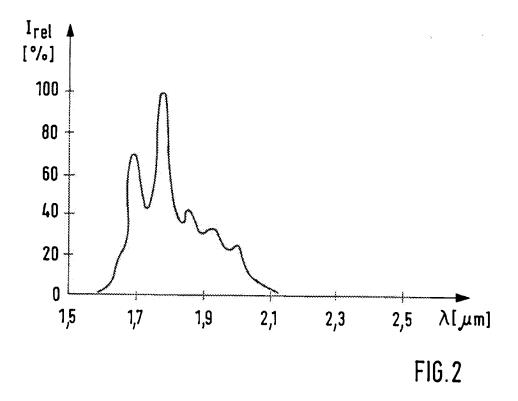
15

19. Sicherheitselement nach Anspruch 18, dadurch **gekennzeichnet**, dass das Trägermaterial aus Papier besteht, und die lumineszierende Substanz im Papier in einer Konzentration von höchstens 6 Gew.%, vorzugsweise im Bereich von 0,05 bis 1 Gew.% vorliegt.

- 20. Sicherheitselement nach Anspruch 18, dadurch **gekennzeichnet**, dass das Trägermaterial aus Kunststoff besteht, und die lumineszierende Substanz im Kunststoff in einer Konzentration von höchstens 2. Gew.% vorliegt.
- 5 21. Sicherheitselement, welches zumindest ein Trägermaterial und eine lumineszierende Substanz auf der Basis von mit wenigstens einem Seltenerdmetall dotierten Wirtsgitter aufweist, das im Wesentlichen im sichtbaren Spektralbereich absorbiert und anregbar ist und zumindest in Teilbereichen des IR-Spektralbereichs transparent ist, wobei das Seltenerdmetall Thulium ist, und der Lumineszenzstoff in einer auf das Trägermaterial aufgebrachten Schicht in einer so hohen Konzentration vorliegt, dass die Eigenschaften der aufgebrachten Schicht gerade nicht beeinträchtigt werden.
- 22. Sicherheitselement nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, dass die
   lumineszierende Substanz in einer Druckfarbe in einer Konzentration im
   Bereich von 1 bis 40 Gew.%, vorzugsweise von 10 bis 30 Gew.% vorliegt.
- 23. Sicherheitselement nach einem der Ansprüche 18 bis 22, dadurch gekennzeichnet, dass das Sicherheitselement die Form eines Streifens oder
   Bandes aufweist.
  - 24. Sicherheitselement nach Anspruch 23, dadurch gekennzeichnet, dass das Trägermaterial als Sicherheitsfaden oder Melierfaser ausgebildet ist.
- 25. Sicherheitselement nach wenigsten einem der Ansprüche 18 bis 23, dadurch gekennzeichnet, dass das Sicherheitselement als Etikett ausgebildet ist.



**ERSATZBLATT (REGEL 26)** 



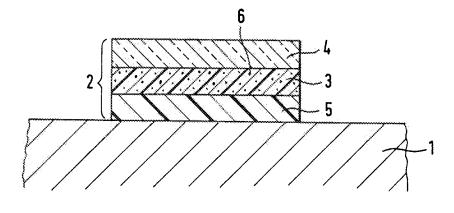


FIG. 3

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

national Application No PCT/EP 99/00593

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 B41M3/14 B42D15/00 G09F3/00

B42D15/10

G07D7/00

G06K19/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

#### B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 B41M B42D G07D G06K G09F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 81 03507 A (GAO GESELLSCHAFT FÜR AUTOMATION UND ORGANISATION MBH) 10 December 1981 see page 1, line 4 - line 10 see page 8, line 11 - page 12, line 9; claims 1-3,11,23-25; example 9	1,4,10, 18,21
X	WO 81 03510 A (GAO GESELLSCHAFT FÜR AUTOMATION UND ORGANISATION MBH)  10 December 1981  see page 1, line 5 - line 16  see page 6, line 22 - line 28  see page 9, line 7 - line 15  see page 14, line 10 - page 16, line 17;  claims 1,2,13-19,25-32; example 2  -/	1,4,18, 21

X Further documents are listed in the continuation of box C.	χ Patent family members are listed in annex.
Special categories of cited documents:  "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  "E" earlier document but published on or after the international filling date  "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  "P" document published prior to the international filling date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.  "&" document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
12 May 1999	26/05/1999
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk	Authorized officer
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016	Bacon, A

Ir. ationales Aktenzeichen PCT/EP 99/00593

a. klassifizierung des anmeldungsgegenstandes IPK 6 B41M3/14 B42D15/00 B42D15/10 G07D7/00 G06K19/14 G09F3/00 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole )
IPK 6 B41M B42D G07D G06K G09F Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank, und evtl. verwendete Suchbegriffe) C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Kategorie\* Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile Betr. Anspruch Nr. X WO 81 03507 A (GAO GESELLSCHAFT FÜR 1,4,10, AUTOMATION UND ORGANISATION MBH) 18.21 10. Dezember 1981 siehe Seite 1, Zeile 4 - Zeile 10 siehe Seite 8, Zeile 11 - Seite 12, Zeile 9; Ansprüche 1-3,11,23-25; Beispiel 9 X WO 81 03510 A (GAO GESELLSCHAFT FÜR 1,4,18, AUTOMATION UND ORGANISATION MBH) 10. Dezember 1981 siehe Seite 1, Zeile 5 - Zeile 16 siehe Seite 6, Zeile 22 - Zeile 28 siehe Seite 9, Zeile 7 - Zeile 15 siehe Seite 14, Zeile 10 - Seite 16, Zeile 17; Ansprüche 1,2,13-19,25-32; Beispiel 2 Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu X Siehe Anhang Patentfamilie Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Theorie angegeben ist aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" ållteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden "Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erlindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahellegend ist ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
 "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 12. Mai 1999 26/05/1999 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016 Bacon, A

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

I. .atlonales Aktenzeichen
PCT/EP 99/00593

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung		litglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 8103508 A		GB	2089383 A,B	23-06-1982
	in the second	JP	2012196 B	19-03-1990
		JP	57500919 T	27-05-1982
		SE	448387 B	16-02-1987
		SE	8107668 A	21-12-1981
		US	4451530 A	29-05-1984

li iationales Aktenzeichen
PCT/EP 99/00593

0/5		99/00593
C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	
	1 elle	Betr. Anspruch Nr.
X	FR 2 554 122 A (RHONE-POULENC SPÉCIALITÉS CHIMIQUES) 3. Mai 1985 siehe Seite 1, Zeile 1 - Zeile 3 siehe Seite 3, Zeile 12 - Zeile 27 siehe Seite 10, Zeile 24 - Seite 11, Zeile 3; Ansprüche 1,16,20-24,33,34 siehe Seite 12, Zeile 30 - Seite 14, Zeile 25	1,4,18,
***************************************	WO 81 03509 A (GAO GESELLSCHAFT FÜR AUTOMATION UND ORGANISATION MBH) 10. Dezember 1981 siehe Ansprüche 1-9; Beispiel 4 siehe Seite 1, Zeile 1 - Zeile 4	1,4,18, 21
(	WO 81 03508 A (GAO GESELLSCHAFT FÜR AUTOMATION UND ORGANISATION MBH) 10. Dezember 1981 siehe Ansprüche 1-20; Beispiele 4-6,8	1,4,18,
***************************************		
Addidadin iingga a ga g		
	V/210 (Fortsatzung von Blatt 2) (  uiii 1992)	

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

lı ationales Aktenzeichen
PCT/EP 99/00593

lm Recherchenbericht angeführtes Patentdokum		Datum der Veröffentlichung		itglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 8103507	A	10-12-1981	AT AT CH DE EP FR GB JP JP SE SE US	378383 B 900481 A 659098 A 3121491 A 0052624 A 2484334 A 2088919 A,B 2012195 B 57500918 T 455710 B 8107667 A 4452843 A	25-07-1985 15-12-1984 31-12-1986 13-05-1982 02-06-1982 18-12-1981 16-06-1982 19-03-1990 27-05-1982 01-08-1988 21-12-1981 05-06-1984
WO 8103510	A	10-12-1981	AT AT AT CH CH DE EP FR GB JP JP SE US	400372 B 236684 A 377028 B 900281 A 656656 A 659145 A 3121484 A 0053183 A 2484920 A 2089385 A,B 2012197 B 57500922 T 450779 B 8107670 A 4451521 A 4598205 A	27-12-1995 15-04-1995 25-01-1985 15-06-1984 15-07-1986 31-12-1986 29-04-1982 09-06-1982 24-12-1981 23-06-1982 19-03-1990 27-05-1982 27-07-1987 21-12-1981 29-05-1984 01-07-1986
FR 2554122	A	03-05-1985	AU AU BR EP JP JP JP	571276 B 3490384 A 8405555 A 0147252 A 1462422 C 60203691 A 63008157 B	14-04-1988 06-06-1985 10-09-1985 03-07-1985 14-10-1988 15-10-1985 20-02-1988
WO 8103509	Α	10-12-1981	AT AT CH DE EP FR GB JP JP SE SE US	378210 B 900381 A 656655 A 3121523 A 0053148 A 2484921 A 2088920 A,B 2012198 B 57500923 T 450778 B 8107669 A 4442170 A 4533244 A	10-07-1985 15-11-1984 15-07-1986 15-04-1982 09-06-1982 24-12-1981 16-06-1982 19-03-1990 27-05-1982 27-07-1987 21-12-1981 10-04-1984 06-08-1985
WO 8103508	A	10-12-1981	DE AT AT CH EP FR	3020652 A 376724 B 900181 A 659099 A 0053124 A 2484922 A	10-12-1981 27-12-1984 15-05-1984 31-12-1986 09-06-1982 24-12-1981

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

I national Application No PCT/EP 99/00593

C /C==**		PCT/EP 99/00593
Category *	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT  Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Χ		
^	FR 2 554 122 A (RHONE-POULENC SPÉCIALITÉS CHIMIQUES) 3 May 1985 see page 1, line 1 - line 3 see page 3, line 12 - line 27 see page 10, line 24 - page 11, line 3; claims 1,16,20-24,33,34 see page 12, line 30 - page 14, line 25	1,4,18, 21
X	WO 81 03509 A (GAO GESELLSCHAFT FÜR AUTOMATION UND ORGANISATION MBH) 10 December 1981 see claims 1-9; example 4 see page 1, line 1 - line 4	1,4,18, 21
X	WO 81 03508 A (GAO GESELLSCHAFT FÜR AUTOMATION UND ORGANISATION MBH) 10 December 1981 see claims 1-20; examples 4-6,8	1,4,18, 21
Commission of the second		
energia de la constanta de la		
ė.		
		***************************************

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

It rational Application No PCT/EP 99/00593

Patent document		Publication	***************************************	Patent family	Publication
cited in search repo	rt 	date		member(s)	date
WO 8103507	A	10-12-1981	AT CH DE EP FR GB JP SE SE US	378383 B 900481 A 659098 A 3121491 A 0052624 A 2484334 A 2088919 A,B 2012195 B 57500918 T 455710 B 8107667 A 4452843 A	25-07-1985 15-12-1984 31-12-1986 13-05-1982 02-06-1982 18-12-1981 16-06-1982 19-03-1990 27-05-1982 01-08-1988 21-12-1981 05-06-1984
WO 8103510	A	10-12-1981	AT AT AT CH CH DE EP FR GB JP JP SE SE US	400372 B 236684 A 377028 B 900281 A 656656 A 659145 A 3121484 A 0053183 A 2484920 A 2089385 A,B 2012197 B 57500922 T 450779 B 8107670 A 4451521 A 4598205 A	27-12-1995 15-04-1995 25-01-1985 15-06-1984 15-07-1986 31-12-1986 29-04-1982 09-06-1982 24-12-1981 23-06-1982 19-03-1990 27-05-1982 27-07-1987 21-12-1981 29-05-1984 01-07-1986
FR 2554122	A	03-05-1985	AU AU BR EP JP JP JP	571276 B 3490384 A 8405555 A 0147252 A 1462422 C 60203691 A 63008157 B	14-04-1988 06-06-1985 10-09-1985 03-07-1985 14-10-1988 15-10-1985 20-02-1988
WO 8103509	A	10-12-1981	AT AT CH DE EP FR GB JP SE SE US	378210 B 900381 A 656655 A 3121523 A 0053148 A 2484921 A 2088920 A,B 2012198 B 57500923 T 450778 B 8107669 A 4442170 A 4533244 A	10-07-1985 15-11-1984 15-07-1986 15-04-1982 09-06-1982 24-12-1981 16-06-1982 19-03-1990 27-05-1982 27-07-1987 21-12-1981 10-04-1984 06-08-1985
WO 8103508	Α	10-12-1981	DE AT AT CH EP FR	3020652 A 376724 B 900181 A 659099 A 0053124 A 2484922 A	10-12-1981 27-12-1984 15-05-1984 31-12-1986 09-06-1982 24-12-1981

di i		INTERNATIONAL SEARCH REPORT Information on patent family members					
	Patent document cited in search report	Publication date		Patent family member(s)	Publication date		
***************************************	WO 8103508 A	,	GB JP JP SE SE US	2089383 A,B 2012196 B 57500919 T 448387 B 8107668 A 4451530 A	23-06-1982 19-03-1990 27-05-1982 16-02-1987 21-12-1981 29-05-1984		